



*Priority  
Paper  
#4  
7-1802*

PATENT

IN THE U.S. PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant: TATSUTA et al. Confirmation No.: 6209  
Appl. No.: 10/043,215 Group: 2871  
Filed: January 14, 2002 Examiner: UNKNOWN  
For: OPTICAL DIFFUSION ELEMENT AND DISPLAY  
DEVICE EQUIPMENT WITH THE OPTICAL  
DIFFUSION ELEMENT

RECEIVED  
APR 22 2002  
TECHNOLOGY CENTER 2800

LETTER

Assistant Commissioner for Patents  
Washington, DC 20231

Date: April 22, 2002

Sir:

Under the provisions of 35 U.S.C. § 119 and 37 C.F.R. § 1.55(a), the applicant(s) hereby claim(s) the right of priority based on the following application(s):

<u>Country</u>	<u>Application No.</u>	<u>Filed</u>
JAPAN	2001-005749	January 12, 2001

A certified copy of the above-noted application(s) is(are) attached hereto.

If necessary, the Commissioner is hereby authorized in this, concurrent, and future replies, to charge payment or credit any overpayment to Deposit Account No. 25-0120 for any additional fee required under 37 C.F.R. §§ 1.16 or 1.17; particularly, extension of time fees.

Respectfully submitted,

YOUNG & THOMPSON

By   
Robert J. Patch, #17,355

RJP:psf

745 South 23<sup>rd</sup> Street, Suite 200  
Arlington, Virginia 22202  
(703) 521-2297

Attachment



日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2001年 1月12日

出 願 番 号

Application Number:

特願2001-005749

[ST.10/C]:

[JP2001-005749]

出 願 人

Applicant(s):

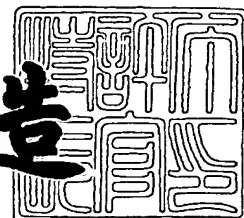
富士写真フイルム株式会社

RECEIVED  
APR 22 2002  
TECHNOLOGY CENTER 2800

2002年 1月18日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3117460

【書類名】 特許願

【整理番号】 FSP-00880

【提出日】 平成13年 1月12日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 G02B 5/02  
G02F 1/1335

【発明者】

【住所又は居所】 静岡県富士宮市大中里 2 0 0 番地 富士写真フイルム株式会社内

【氏名】 龍田 純隆

【発明者】

【住所又は居所】 静岡県富士宮市大中里 2 0 0 番地 富士写真フイルム株式会社内

【氏名】 若田 裕一

【特許出願人】

【識別番号】 000005201

【氏名又は名称】 富士写真フイルム株式会社

【代理人】

【識別番号】 100079049

【弁理士】

【氏名又は名称】 中島 淳

【電話番号】 03-3357-5171

【選任した代理人】

【識別番号】 100084995

【弁理士】

【氏名又は名称】 加藤 和詳

【電話番号】 03-3357-5171

【選任した代理人】

【識別番号】 100085279

【弁理士】

【氏名又は名称】 西元 勝一

【電話番号】 03-3357-5171

【選任した代理人】

【識別番号】 100099025

【弁理士】

【氏名又は名称】 福田 浩志

【電話番号】 03-3357-5171

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 006839

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9800120

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 光拡散体及び表示装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 中心から外部に向かって屈折率が変化した粒子を自己融着させて得られることを特徴とする光拡散体。

【請求項 2】 前記粒子の最外部の成分のガラス転移温度が 1 0 0℃よりも低いことを特徴とする請求項 1 に記載の光拡散体。

【請求項 3】 前記粒子が自己融着して形成された層の一方の面に隣接かつ接触した光学的透明層が形成されていることを特徴とする請求項 1 または請求項 2 に記載の光拡散体。

【請求項 4】 前記光学的透明層がドライフィルムラミネート法により形成されていることを特徴とする請求項 3 に記載の光拡散体。

【請求項 5】

前記粒子の平均粒径が 0. 5 0 ～ 2 0  $\mu$  mであることを特徴とする請求項 1 乃至請求項 4 のいずれかに記載の光拡散体。

【請求項 6】 前記請求項 1 乃至請求項 5 のいずれかに記載の光拡散体を用いたことを特徴とする表示装置。

【請求項 7】

前記拡散体が液晶セルの内側に形成されていることを特徴とする請求項 6 に記載の表示装置。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は光拡散体及び表示装置に関し、詳しくは、光散乱なく、透過光を前方拡散させる光拡散体、及び特に反射型 LCD において効果的に光をロスせず、視野角も広げる光拡散フィルム、偏光膜の内側に入れても消偏性（偏光解消）のない光拡散フィルム、液晶セルの内面に入れても消偏性なく光拡散効果が高く、かつ液晶の配向乱れを生じさせない薄膜光拡散体等を用いた表示装置に関する。

【0 0 0 2】

## 【従来の技術】

光拡散材料は調光材料、光学素子、表示素子などの各種分野で利用されている。また近年では液晶ディスプレイ等の表示材料の表示品位の向上、視野角特性の改良等への利用が進んでいる。光拡散材料の構成としては例えばすりガラスの様に表面に微細な凹凸を形成する方法、あるいは樹脂膜中に数 $\mu\text{m}$ から致十 $\mu\text{m}$ の粒子を分散させる方法などが一般的に用いられてきた。しかしながら、これらの方法では確かに光の散乱は可能であるが、光の後方への散乱も大きくなるので透過光量が低くなってしまったり、表示画面のコントラストを落としてしまう。また、偏光解消も起きてしまう為に近年要望が強い液晶ディスプレイ等への利用は困難である。また表示材料用にも透過光量が少ないために光源への負荷が大きくなってしまふ。そこで後方散乱が少なく、かつ高い光拡散性を有し、偏光解消の起こらない光拡散材料が求められている。

## 【0003】

この様な問題を解決するための手段として、例えば、凹凸形状をレンズ状に設計し光の屈折を利用する方法が知られている。しかしながら、この方法では微細な凹凸形状の形成が煩雑で生産性に劣る、また拡散材料が汚染や衝撃に弱い、凹凸を有するために液晶ディスプレイのセル内に用いようとすると、配向乱れを起こし、表示品位を著しく落としてしまうために使えない。

## 【0004】

また、微粒子を用いる方法も知られている。特に粒子による光の散乱ではなく屈折を利用する目的で粒子は内部の分布が均一ではなく、粒子中の屈折率を内部と表面部の間で変化させた微粒子を用いた光拡散材料が知られている。これらの方法では光の後方散乱を有する程度は少なく抑えながら光拡散性を確保している。

## 【0005】

しかしながら、光拡散体を製造する場合、これらの粒子をバインダーに分散させ、このバインダーを介して粒子を接着させており、この結果、粒子の面内存在量を高めることが難しいため、得られる光拡散体は、光拡散効果が十分でなく、薄膜化も期待することができない。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の第 1 の目的は、光の後方散乱を少なく抑えながら光拡散性を確保することでき、かつ薄膜化を図ることができる光拡散体を提供することにある。

本発明の第 2 の目的は、光をロスすることなく、視野角を広げることができ、偏光解消のない表示装置を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】

すなわち、本発明の光拡散体は、

< 1 > 中心から外部に向かって屈折率が変化した粒子を自己融着させて得られることを特徴とする光拡散体である。

< 2 > 前記粒子の最外部の成分のガラス転移温度が 1 0 0 ℃ よりも低いことを特徴とする前記< 1 >に記載の光拡散体である。

< 3 > 前記粒子が自己融着して形成された層の一方の面に隣接かつ接触した光学的透明層が形成されていることを特徴とする前記< 1 >または前記< 2 >に記載の光拡散体である。

< 4 > 前記光学的透明層がドライフィルムラミネート法により形成されていることを特徴とする前記< 3 >に記載の光拡散体である。

< 5 > 前記粒子の平均粒径が 0 . 5 0 ~ 2 0  $\mu$  m であることを特徴とする前記< 1 >乃至前記< 4 >のいずれかに記載の光拡散体である。

本発明の表示装置は、

< 6 > 前記< 1 >乃至前記< 5 >のいずれかに記載の光拡散体を用いたことを特徴とする表示装置である

< 7 > 前記拡散体が液晶セルの内側に形成されていることを特徴とする前記< 6 >に記載の表示装置である。

【0008】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の光拡散体及び表示装置の好ましい実施の形態について説明する。

—重合体粒子の製造方法—

2成分以上の成分からなり、その粒子内の分布が不均一な粒子の形成法としては通常の乳化程合によるコアシェルラテックスを形成する方法が一般的である。しかしながらこの場合は得られる微粒子の粒径は $0.1\ \mu\text{m}$ と非常に小さく、本発明の目的である光拡散性を示すことはできず、 $0.5\sim 20\ \mu\text{m}$ の粒子径が必要である。本発明において、この様な粒子( $0.5\sim 20\ \mu\text{m}$ )を形成するために各種の粒子とその作製法が適用される。

## 【0009】

例えば、予め微粒子(シード粒子と呼ばれる)を形成しておき、ここに新たなモノマーを重合させる、いわゆるシード重合法を用いることができる。シード粒子はソープフリー乳化重合などで第1のモノマーを重合させて形成する。この粒子へ第2のモノマーを添加、シード粒子に吸収させながら重合をすすめることで粒子内のポリマーに分布を形成する。この第2のモノマーの添加は一度に添加、何日かに分けて添加、連続的に添加などの方法がある。この場合、必ずしも第1のモノマーから得られるポリマーがコアに多く、第2のモノマーから得られるポリマーがシェルに多いとは限らないが、各モノマーの親疎水性や第2のモノマーの添加速度の調整などにより、所望のモルフオロジーに制御することができる。

(“高分子微粒子の最新技術と用途展開” シーエムシー(1997)、“高分子ラテックス(新高分子文庫26)” 室井宗一、森野郁夫 高分子刊行会(1988)など)

## 【0010】

また、最初のシード粒子に第1のモノマーの吸収、重合を繰り返すことで粒子径を所望の大きさにまで成長させてから用いることもできる。この方法で第1のモノマーから得られるポリマーと、第2のモノマーから得られるポリマーの屈折率が実質的に異なる組み合わせを用いることができる。なお、この第1のモノマー、第2のモノマーはそれぞれが1種でも、あるいは第1のモノマー群から得られる共重合体と第2のモノマー群から得られる共重合体の屈折率が実質的に異なるものであればモノマーの種類は2種以上であっても構わない。

## 【0011】

また、ミクロ懸濁重合を用いることもできる。この方法を通常の懸濁重合で用



いていわゆるG r i nレンズを形成する。(小池康博ら A p l l . O p t . 3 3 ( 1 6 ) 3 3 9 4 ( 1 9 9 4 ) ) この場合モノマーM1をPVA水溶液中に添加し、懸濁重合を行いながら少し遅れてM1モノマーから得られるポリマーとは実質的に屈折率が異なるポリマーを与えるモノマーM2を滴下しながら重合すること、あるいは該モノマーM1をPVA水溶液中に添加し、懸濁重合を行って粒子を形成したのちに該モノマーM2と開始剤を添加して再度重合を行うことなどの方法で粒子内部の屈折率を連続的に変化させた粒子を形成させる。但しこの文献ではG r i nレンズ用途を狙い、通常の懸濁重合を用いているために粒子径は約0.5~1.1mmと大きい。

従って本発明の光拡散体の用途に用いるには、前記G r i nレンズ用途の粒子をホモジナイサー等の高シェアの分散機で分散した後に重合を行う方法(マイクロ懸濁重合)を用い、所望の粒子径(例えば、5~20 $\mu$ m)に調整することができる。

#### 【0012】

マイクロ懸濁重合を用いる例で粒子内のポリマー分布を有するミクロンサイズ粒子を形成する具体例としては、例えばモノマーM1をまず20%程度まで重合させ、この反応液を水相にマイクロ懸濁させて更に重合を進め、ここにモノマーM2を滴下しながら重合させる方法も利用できる。(Michael F. らと J P o l y m . S c i . P a r t A 38 345 (2000))。但し、所望の屈折率の分布に制御するためには、モノマーの選定、重合条件等を設定する必要がある。

#### 【0013】

この際、予めモノマーM1を重合させたポリマーを用意し、これとモノマーM1を混合した状態で水相にマイクロ懸濁させ、ここにモノマーM2を滴下しながら重合させる方法、あるいはマイクロ懸濁させた状態で重合を開始し、その後にモノマーM2を滴下しながら更に重合させる方法なども利用できる。

これらの方法でモノマーM1から得られるポリマーと、モノマーM2から得られるポリマーの屈折率が実質的に異なるモノマーの組み合わせを用いる方法も本発明に利用できる。この場合もモノマーM1, M2はそれぞれ1種であっても、

あるいはモノマーM1群から得られる共重合体と、モノマーM2群から得られ共重合体の屈折率が実質的に異なるものであればモノマーの種類は2種以上であっても構わない。

## 【0014】

特に本発明の光拡散体を作製するに好適な重合粒子としては、以下の方法で製造されたものが好適である。

すなわち、少なくとも第1のモノマー群と第2のモノマー群から得られる重合体粒子であって、第1のモノマー群から得られる重合体の屈折率が第2のモノマー群から得られる重合体の屈折率よりも実質的に高くなる組み合わせであって、少なくとも該第1または第2のモノマー群から選ばれるモノマー、重合開始剤の中にそれぞれ相当する第1または第2のモノマー群から選ばれたモノマーの重合で得られる重合体を混合させた後、その混合物を媒体中に分散させ、その後、重合反応によって重合体粒子形成を行なう過程において重合が終結する前に、更にそれぞれ、第2または第1のモノマー群から選ばれるモノマーを後添加しながら重合させて平均粒径が0.5～20 $\mu$ mの重合体粒子を形成させる方法である。

## 【0015】

重合体粒子の形成には少なくとも第1のモノマー群と第2のモノマー群から少なくとも1ヶ以上のモノマーを選択して用いる。この第1のモノマー群と第2のモノマー群は第1のモノマー群から得られる重合体の屈折率が第2のモノマー群から得られる重合体の屈折率よりも実質的に高くなる組み合わせで有ればモノマーの種類は特に限定はされない。実際には屈折率の差としては0.01以上が好ましく、0.05以上が更に好ましく、0.1以上が特に好ましい。重合体粒子の屈折率は、中心と外部に向かって変化していればよく、外部側が高くてもよく、また中心が高くてもよく、重合体粒子の屈折率の変化は好ましくは連続的である。なお、各モノマーから得られる重合体の屈折率については、例えば、POLYMER HANDBOOK (JOHN WILEY & SONS) などに記載されている。

## 【0016】

この様な屈折率差を生ずる様にするためには第1のモノマー群としては分子中

に芳香環あるいは臭素原子、塩素原子、硫黄原子の少なくとも1種を有し、かつエチレン性二重結合を少なくとも1ヶ有する化合物が挙げられる。より具体的にはスチレン、ビニルナフタレン、クロロスチレン、ブロモスチレン、クロロメチルスチレン、メトキシスチレン、メチルスチレン、ジビニルベンゼン、フェニル（メタ）アクリレート、ベンジル（メタ）アクリレート、ベンジル（メタ）アクリルアミド、2-フェニルエチル（メタ）アクリレート、2-（トリブロモフェニル）エチル（メタ）アクリレート、2-（トリブロモフェニルオキシ）エチル（メタ）アクリレート、3-（*m*-メチルブロモフェノキシ）-2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、2, 2-ビス（4-（メタ）アクリロイルオキシエトキシ-3, 5-ジブロモフェニル）プロパン、3-（*m*-メチルクロロフェノキシ）-2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、ビス（4-メタクリロイルチオフェニル）スルフィド、ビス（4-ビニルチオフェニル）スルフィド、ビス（ $\beta$ -（メタ）アクリロイルオキシエチルチオ）キシリレン、ジアリルフタレート、ビニルクロリド、ビニリデンクロリド、安息香酸ビニル、クロロ安息香酸ビニル、ブロモ安息香酸ビニル、安息香酸アリル、クロロ安息香酸アリル、ブロモ安息香酸アリルなどが挙げられる。用いるモノマーはこれらの中の1種でも2種以上の組み合わせでも構わない。

#### 【0017】

一方、第2のモノマー群としては分子中に芳香環あるいは臭素原子、塩素原子、硫黄原子の何れも有さず、かつエチレン性二重結合を少なくとも1ヶ有する化合物が挙げられる。より具体的にはアルキル（メタ）アクリレート（該アルキル基としてはメチル、エチル、*n*-プロピル、*i*-プロピル、*n*-ブチル、*i*-ブチル、*t*-ブチル、ヘキシル、シクロヘキシル、2-エチルヘキシルなど）、フッ化アルキル（メタ）アクリレート（該フッ化アルキル基としては $(CH_2)_m C_n F_{2n+1}$ （*m*は0~3、*n*は1~10を示す）、ヘキサフロロイソプロピル、トリフロロイソプロピルなど）、（メタ）アクリル酸、酢酸ビニル、アルキルビニルエーテル（該アルキル基としてはメチル、エチル、*n*-プロピル、*i*-プロピル、*n*-ブチル、*i*-ブチル、*t*-ブチル、ヘキシル、シクロヘキシル、2-エチルヘキシルなど）が挙げられる。

## 【 0 0 1 8 】

これらのモノマー群の組み合わせの中でも、その重合性や溶解性、供給性、及び屈折率の差等の観点から特に第1のモノマー群から選択されるモノマーがスチレン、及び置換スチレン、ベンジル（メタ）アクリレート、2-フェニルエチル（メタ）アクリレート、2-（トリブロモフェニル）エチル（メタ）アクリレート、2-（トリブロモフェニルオキシ）エチル（メタ）アクリレート、ビス（4-メタクリロイルチオフェニル）スルフィド、ビス（4-ビニルチオフェニル）スルフィド、ジアリルフタレートであって、第2のモノマー群から選択されるモノマーがアルキル（メタ）アクリレート類、フッ化アルキル（メタ）アクリレート類である組み合わせが好ましい。

## 【 0 0 1 9 】

重合開始剤としては、公知の熱重合開始剤、光重合開始剤などが利用できる。例えば熱重合開始剤としては、2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル、2, 2'-アゾビス（2, 4-ジメチルバレロニトリル）などのアゾ系開始剤、ベンゾイルパーオキシドなどの過酸化物系開始剤などが挙げられる。

## 【 0 0 2 0 】

光重合開始剤としては、米国特許第2367660号明細書に記載のビシナルポリケタルドニル化合物、米国特許第2448828号明細書に記載のアシロインエーテル化合物、米国特許第2722512号明細書に記載の $\alpha$ -炭化水素で置換された芳香族アシロイン化合物、米国特許第3046127号明細書及び同第2951758号明細書に記載の多核キノン化合物、米国特許第3549367号明細書に記載のトリアリールイミダゾール二量体とp-アミノケトンの組合せ、特公昭51-48516号公報に記載のベンゾチアゾール化合物とトリハロメチルーs-トリアジン化合物、米国特許第4239850号明細書に記載のトリハロメチルーs-トリアジン化合物、米国特許第4212976号明細書に記載のトリハロメチルオキサジアゾール化合物等を挙げることができる。

## 【 0 0 2 1 】

また、前記光重合開始剤として、ベンゾフェノン、カンファーキノン、4, 4'-ビス（ジメチルアミノ）ベンゾフェノン、4-メトキシ-4'-ジメチルアミ

ノベンゾフェノン、4, 4'-ジメトキシベンゾフェノン、4-ジメチルアミノベンゾフェノン、4-ジメチルアミノアセトフェノン、ベンジルアントラキノン、2-tert-ブチルアントラキノン、2-メチルアントラキノン、キサントン、チオキサントン、2-クロルチオキサントン、2, 4-ジエチルチオキサントン、フルオレノン、アクリドン、ビス(2, 4, 6-トリメチルベンゾイル)-フェニルホスフィンオキサイド等のビスアシルホスフィンオキサイド類、Lucirin TPO等のアシルホスフィンオキサイド類、 $\alpha$ -ヒドロキシ又は $\alpha$ -アミノアセトフェノン類、 $\alpha$ -ヒドロキシシクロアルキルフェニルケトン類、ジアルコキシアセトフェノン類等の芳香族ケトン類；

【0022】

ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソプロピルエーテル、ベンゾインフェニルエーテル等のベンゾイン及びベンゾインエーテル類；2-(o-クロロフェニル)-4, 5-ジフェニルイミダゾール二量体、2-(o-クロロフェニル)-4, 5-ジ(m-メトキシフェニル)イミダゾール二量体、2-(o-フルオロフェニル)-4, 5-ジフェニルイミダゾール二量体、2-(o-メトキシフェニル)-4, 5-ジフェニルイミダゾール二量体、2-(p-メトキシフェニル)-4, 5-ジフェニルイミダゾール二量体等の2, 4, 6-トリアリールイミダゾール二量体、その他米国特許第3784557号、同4252887号、同4311783号、同4459349号、同4410621号、同4622286号等に記載の化合物；

【0023】

四臭化炭素、フェニルトリブロモメチルスルホン、フェニルトリクロロメチルケトン等のポリハロゲン化合物；特開昭59-133428号、特公昭57-1819号、特公昭57-6096号、米国特許第3615455号に記載の化合物；

【0024】

2, 4, 6-トリス(トリクロロメチル)-s-トリアジン、2-メトキシ-4, 6-ビス(トリクロロメチル)-s-トリアジン、2-アミノ-4, 6-ビス(トリクロロメチル)-s-トリアジン、2-(p-メトキシスチリル)-4

、6-ビス(トリクロロメチル)-s-トリアジン等の特開昭58-29803号記載のトリハロゲン置換メチル基を有するs-トリアジン誘導体；

## 【0025】

メチルエチルケトンパーオキサイド、シクロヘキサノンパーオキサイド、3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサノンパーオキサイド、ベンゾイルパーオキサイド、ジターシャリーブチルジパーオキシイソフタレート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(ベンゾイルパーオキシ)ヘキサン、ターシャリーブチルパーオキシベンゾエート、a, a'-ビス(ターシャリーブチルパーオキシイソプロピル)ベンゼン、ジクミルパーオキサイド、3, 3', 4, 4'-テトラ- (ターシャリーブチルパーオキシカルボニル) ベンゾフェノン等の特開昭59-189340号記載の有機過酸化物；

## 【0026】

米国特許第4743530号に記載のアジニウム塩；有機ホウ素化合物；フェニルグリオキサル酸メチルエステル等のフェニルグリオキサル酸エステル類；ビス( $\eta^5$ -2, 4-シクロペンタジエン-1-イル)-ビス(2, 6-ジフルオロ-3-(1H-ピロール-1-イル)-フェニル)チタニウム等のチタノセン類； $\eta^5$ -シクロペンタジエニル- $\eta^6$ -クメンル-アイアン(1+) -ヘキサフルオロホスフェイト(1-)等の鉄アレン錯体；ジフェニルヨードニウム塩等のジアリールヨードニウム塩類；トリフェニルスルホニウム塩等のトリアリールスルホニウム塩類等が挙げられる。

## 【0027】

上記光重合開始剤のより詳細な化合物例、及びその他別の種類の光重合開始剤の例としては、特開平10-45816号公報の段落【0067】～【0132】に記載のものを挙げることができる。

## 【0028】

また、前記光重合開始剤としては、二種以上の化合物の組合わせからなる材料を使用することもできる。例えば、2, 4, 5-トリアリールイミダゾール二量体とメルカプトベンズオキサゾール等との組合せ、米国特許第3427161号明細書に記載の4, 4'-ビス(ジメチルアミノ)ベンゾフェノンとベンゾフェ

ノンとベンゾインメチルエーテルとの組合せ、米国特許第4239850号明細書に記載のベンゾイル-N-メチルナフトチアゾリンと2,4-ビス(トリクロロメチル)-6-(4'-メトキシフェニル)-トリアゾールとの組合せ、特開昭57-23602号公報に記載のジアルキルアミノ安息香酸エステルとジメチルチオキサントンの組合せ、特開昭59-78339号公報に記載の4,4'-ビス(ジメチルアミノ)ベンゾフェノンとベンゾフェノンとポリハロゲン化メチル化合物との三種組合せ、等が挙げられる。

## 【0029】

二種以上を組合せてなる光重合開始剤の場合、4,4'-ビス(ジエチルアミノ)ベンゾフェノンとベンゾフェノンとの組合せ、2,4-ジエチルチオキサントんと4-ジメチルアミノ安息香酸エチルとの組合せ、又は4,4'-ビス(ジエチルアミノ)ベンゾフェノンと2,4,5-トリアリールイミダゾール二量体との組合せを用いるのが好ましい。

## 【0030】

また、連鎖移動剤を併用することもできる。連鎖移動剤の例としては、例えば、ドデシルメルカプタン、オクチルメルカプタン、メルカプト酢酸などのメルカプタン系、ジブチルスルフィド、ジブチルジスルフィドなどのスルフィド系、四塩化炭素、クロロホルム、四臭化炭素、ブチルブロマイドなどのハロゲン系、トリエチルアミン、ブチルアミンなどのアミン系などが挙げられる。この連鎖移動剤は該第1または第2のモノマー群から選ばれるモノマー、重合開始剤、及びそれぞれ相当する第1または第2のモノマー群の重合で得られる重合体の混合物と混合して用いても、あるいは後から加える第2または第1のモノマー群から選ばれるモノマーと混合して用いても、あるいは両者に用いても構わない。添加量としては特に限定されないが、モノマーの総量に対して0.01~30mol%が好ましく、0.05~20mol%が更に好ましく、0.1~15mol%が特に好ましい。

またこれらのモノマー液、または、モノマー/ポリマー混合液には必要に応じてそれらの溶剤を添加しておくこともできる。

## 【0031】

また、これらのモノマー、重合体、開始剤等を分散させて重合するための媒体としては水、または水性媒体が好ましい。水性媒体とは水を主成分としながら、例えば、メタノール、エタノール、アセトン、THFなどの水溶性溶媒、あるいはポリビニルアルコール、ポリ（アクリル酸ナトリウム）、ゼラチン、メチルヒドロキシセルロース、ポリエチレングリコール類などの水溶性高分子、ドデシルベンゼンスルホン酸などの界面活性剤などの少なくとも1種以上を含有する水溶液を示す。これらは用いるモノマーとの組み合わせから、特に粒子の分散安定性の付与や粒子径の調整の為に適宜選択して用いることが出来る。

## 【 0 0 3 2 】

本発明では粒子の形成において該モノマー1群または2群から得られる重合体を予め合成し、これをそれぞれ該モノマー1群または第2群から選択されるモノマー、重合開始剤と併用して用いる。該重合体の重量平均分子量、該重合体／モノマー1群又はモノマー2群の併用量比、分散条件（装置、回転数、分散時間など）によって容易に所望の平均粒径に調整することが可能である。即ちこれらの各条件の組み合わせによって粒子径が決定される訳であり、各条件を一概に規定することはできないが、凡そは該重合体の重量平均分子量は2000～40万、好ましくは2000～10万、該重合体／モノマー1群または2群の併用量比は5～80／95～20質量比、好ましくは5～50／95～5質量比である。分散装置については本モジナイザー、ビーズミル等の公知の各種の分散装置を使用することが可能であり、各装置毎に適当な分散条件を選択して使用することができる。

## 【 0 0 3 3 】

この様にして少なくとも該モノマー1群または第2群から選択されたモノマーから予め合成して得られる重合体、該モノマー群から選択されるモノマー、重合開始剤からなる混合物の分散物を得る。この分散時の分散粒子の平均粒径は最終的に得られる光拡散体粒子の粒径に影響するため、0.1～40 $\mu$ mが好ましく、より好ましくは0.8～10 $\mu$ mである。

## 【 0 0 3 4 】

次にこの分散物の重合を開始する。重合は熱重合開始剤を用いている場合であ



れば加熱、光重合開始剤を用いている場合であれば光照射によって行う。この際には重合の停止を抑制するために窒素気流下で重合を行うことが望ましい。この重合の過程において該もう一方のモノマー群から選択されるモノマー（第一の段階で用いたモノマーがモノマー第1群であればモノマー第2群、逆に第一の段階で用いたモノマーがモノマー第2群であればモノマー第2群）をこの重合系に添加する。添加は該モノマーを一度に加えても、あるいは何回かに分けて添加しても、あるいは連続的に滴下しても構わないが、連続的に滴下する方法が好ましい。

#### 【0035】

また、モノマーの滴下の開始は第一段階のモノマーの重合開始が始まると同時に開始しても、あるいは一定時間後に開始しても構わないが、第一段階のモノマーの重合が実質的に終結する時間よりも以前に開始することが好ましい。ここにモノマーの重合が実質的に終結した否かは重合時間の他に分散液の状態、粘度、残存モノマー量等で判断することができるが、重合時間の場合、重合条件によっても異なるが、おおよそ2～6時間、好ましくは2～5時間を目安とすることができる。また、モノマーの滴下のスピードも特に限定されないが10分～3時間程度が好ましい。

このような操作によって粒子中心部と外周部で実質的に屈折率が異なり、平均粒径が0.5～20 $\mu\text{m}$ 、好ましくは1～10 $\mu\text{m}$ 、より好ましくは1～5 $\mu\text{m}$ の重合粒子が得られる。重合体粒子の平均粒径が0.5 $\mu\text{m}$ よりも小さいと光の拡散効果が少なく、20 $\mu\text{m}$ よりも大きいと、膜厚が大きくなりすぎたり、表面の平坦化が得られにいたため、液晶セルの内側に用いられにくくなり、光拡散性粒子としては好ましくない。

#### 【0036】

前記した重合過程において、滴下されるモノマーの重合によって重合体粒子の外周部が形成され、この外周部を形成するポリマーのガラス転移温度は、前記した方法で得られた粒子同士を自己融着させる点から100℃よりも低いことが好ましく、より好ましくは50～90℃である。これらの観点からは、前記した重合過程において、滴下されるモノマーとしては、エチルメタクリレート、シクロ

ヘキシルメタクリレート、2-エチルヘキシルメタクリレート、トリフロロエチルメタクリレート等が好ましい。

#### 【0037】

##### －光拡散体－

本発明の光拡散体を作製する方法としては、上記の光拡散性粒子の重合過程で得られた重合体の分散液を、例えば、所定のメッシュのろ布等を用いて所定の粒径の粒子を含む重合体の分散液に形成し、この分散液を、例えば、ガラス、トリセルロースアセテートフィルム、ポリエチレンテレフタレートフィルム、ポリメチルメタクリレート、ノルボルネン、ポリカーボネート基板等の透明基板上に塗布乾燥して形成するなどの方法が利用できる。この過程で重合体の分散液が乾燥して該分散液中に含まれる粒子が自己融着して緻密に充填された光拡散層が形成される。これらの塗布は通常の塗布方法、すなわち、ワイヤーバー、エクストルージョン、ドクターブレード、スピンコート、スリットダイなど、適宜選択して行うことが出来る。また、あらかじめ仮支持体上に塗布乾燥した後、ドライラミネート法で所望の基板にドライラミネートする事も可能である。

#### 【0038】

本発明にいう「自己融着」とは、実質的に重合体粒子同士が融着して層状に形成される態様を意味する。したがって、本発明において、重合の過程で分散安定剤として水溶性ポリマー等が使用される場合でも加熱によって重合体粒子の外周部を構成するポリマー同士が実質的に融着する場合も包含する。本発明においては、重合体粒子の自己融着によって光拡散層が形成されるので、重合体粒子がバインダーを介して融着される場合に比較して重合体粒子の外周面とバインダーとの間の界面が存在しないため、光散乱による透過光量の減少や偏光解消（消偏性）が起こらない。光拡散体が消偏性がないと、LCDにおいて偏光膜の内側、さらにセルの内側に設置することも可能である。光拡散体が液晶画素に出来るだけ近い位置に持ってくるほど、画像のぼけが少なくてすむことになり、表示素子の解像度が向上する。

#### 【0039】

また、光拡散体を形成する場合、重合体粒子を光拡散体の厚み方向に1列が併

設した程度から光拡散効果が生じるが、好ましくは光拡散体の厚み方向に5～10列程度となるように層状に形成する。

#### 【0040】

更に、バインダーを介することなく重合体粒子同士の自己融着によって、層状に光拡散層を形成できる結果、分布密度の高い光拡散層を形成することができる。このため、光拡散効果が高く、光拡散体の薄膜化を図ることができる。光拡散体の薄膜化が図れることは、液晶セルの内側では、液晶の配向を取るため有効である。ただし、光拡散体の表面はできるだけ平滑であることが望ましい。光拡散体表面を平滑化するためには、重合体粒子同士の自己融着によって、層状に光拡散層を形成した面の表面に隣接、かつ接触した状態で光学的透明層を形成されることが望ましい。。

#### 【0041】

通常、重合体粒子同士の自己融着によって層状に光拡散層を形成すると、表面凹凸によってこの上に透明膜をラミネートしたり、塗布すると、この表面散乱による白さは消える。この表面散乱はクロスニコル下で観察すると、やや、消偏しているので、偏光膜の内側に持って来るには、ラミネートが好ましい。偏光膜より外に持ってくるときは、むしろ、自然発生的にアンチグレア（正反射防止）効果がえられ、好ましい場合もある。

なお、LCDには透過型と、反射型があるが、本発明の光拡散本体はどちらに対しても適用され、輝度をロスせず、視野角を広げられ、特に色の階調バランスを期さないという特徴がある。また、コリメートされた光源との併用によってこの効果は更に高くなる。

#### 【0042】

これらの光拡散体の片面または両面にはハードコート層、防汚層、反射防止層、アンチグレア層、平坦化層、粘着層、帯電防止層などを設けてもよい。

#### 【0043】

##### 【実施例】

以下に、本発明の実施例について説明するが、本発明はこれらの実施例によって何ら限定されるものではない。なお、特に断りのない限り、「部」は「質量部

」を意味する。

以下、実施例及び比較例において得られた光拡散体の評価は、下記のごとく行なった。

合成例、及び比較例の重合体粒子分散物を、それぞれ固形分で  $10 \text{ g/m}^2$  となるように無配向のトリアセテートフィルムに塗布し、 $120^\circ\text{C}$  のオープン中で乾燥加熱した。得られた塗工物の一部に厚さ  $15 \mu\text{m}$  の透明なドライラミネートフィルム（メタクリル酸／メチルメタクリレート／エチルヘキシルアクリレート／ベンジルメタクリレートの  $28.8/55/11.7/4.5$  モル％共重合体）にラミネートした。

【0044】

〔評価方法〕

以下、実施例及び比較例において得られた光拡散体の評価は、下記のごとく項目にわけて5段階の点数で行った。数字が大きいほど、良好であることを示す。

（皮膜性）： 上記フィルムの外観を目視観察。均一な皮膜ほど良好。

（後方散乱）： 上記フィルムを黒の鏡面板に張り付け、上方より目視観察。黒いほど良好。

（光拡散性）： 光拡散体をアルミ蒸着フィルムに張り付け上方より目視観察。アルミの金属光沢が消え、白色に見えるほど良好。

（消偏性）： 光拡散体をアルミ蒸着フィルムに張り付け、光拡散体の上に鏡面反射光を完全にカットする向きに  $1/4 \lambda$  板と直線偏光板をこの順に張り付け、上方より目視観察。反射光がカットされ、黒く見えるほど良好。

【0045】

〔合成例－1〕

ポリスチレンオリゴマー（重量平均分子量 5000）1.0部とスチレン9.0部、ドデシルメルカプタン0.35部、2,2'-アゾビス（2,4-ジメチルバレロニトリル）（和光純薬製 V-65）0.21部を均一に溶解し、これをPVAの1.25質量％水溶液（PVAはクラレ（株）製 PVA-205）40.0部に注ぎ、ホモジナイザーで10000rpmで5分間分散処理をす

る。得られた分散液を窒素気流下で400rpmで攪拌しながら、内温60℃まで昇温し重合を開始する。昇温後30分後からエチルメタクリレート10.0部を1時間かけて滴下し、更に4時間重合反応を継続する。得られた反応液を100メッシュのろ布でろ過することで重合体粒子の分散液を得た。粒子の平均粒径は2.4 $\mu$ mであった。また、粒子外周部のガラス転移温度は65℃であった。

## 【0046】

## [合成例-2]

合成例-1において、エチルメタクリレート10.0部をエチルメタクリレート4.75部、メタクリル酸0.25部に変更し、滴下時間を1時間から30分に変更する他は合成例-1と同様にして重合体粒子の分散液を得た。粒子の平均粒径は4.1 $\mu$ mであった。また、粒子外周部のガラス転移温度は71℃であった。

## 【0047】

## [合成例-3]

ポリベンジルメタクリレート（質量平均分子量 10000）1.0部とベンジルメタクリレート9.0部、ドデシルメルカプタン0.20部、2, 2'-アゾビス（2, 4-ジメチルバレロニトリル）（和光純薬製 V-65）0.13部を均一に溶解し、これをPVAの1.25質量%水溶液（PVAはクラレ（株）製 PVA-205）40.0部に注ぎ、ホモジナイザーで10000rpmで5分間分散処理をする。得られた分散液を窒素気流下で400rpmで攪拌しながら、内温60℃まで昇温し重合を開始する。昇温後30分後からエチルメタクリレート5.0部を30分かけて滴下し、更に4時間重合反応を継続する。得られた反応液を100メッシュのろ布でろ過することで重合体粒子の分散液を得た。粒子の平均粒径は3.1 $\mu$ mであった。また、粒子外周部のガラス転移温度は65℃であった。

## 【0048】

## [合成例-4]

合成例-3において、昇温後30分後からエチルメタクリレート5.0部を30分かけて滴下する工程を、昇温直後からエチルメタクリレート5.0部を30

分かけて滴下するように変更する以外は合成例－3と同様に処理することで重合体粒子の分散液を得た。粒子の平均粒径は $2.7\mu\text{m}$ であった。また、粒子外周部のガラス転移温度は $65^{\circ}\text{C}$ であった。

## 【0049】

## 〔合成例－5〕

ベンジルメタクリレート10.0部、ドデシルメルカプタン0.20部、2, 2'-アソピス(2, 4-ジメチルバレロニトリル)(和光純薬製 V-65)0.13部を均一に溶解し、これをPVAの1.25重量%水溶液(PVAはクラレ(株)製、PVA-205)40.0部に注ぎ、ホモジナイザーで3000rpmで5分間分散処理する。得られた分散液を窒素気流下で400rpmで攪拌しながら、内温 $60^{\circ}\text{C}$ まで昇温し重合を開始する。昇温後30分後からエチルメタクリレート5.0部を30分かけて滴下し、さらに4時間重合反応を継続する。得られた反応液を100メッシュのろ布でろ過することで重合体粒子の分散液を得た。粒子の平均粒子は $1.9\mu\text{m}$ であった。また、粒子外側部のガラス転移温度は $65^{\circ}\text{C}$ であった。

## 【0050】

## 〔比較合成例－1〕

スチレン10.0部、ドデシルメルカプタン0.35部(2, 2'-アソピス(2, 4-ジメチルバレロニトリル)(和光純薬製 V-65)0.21部を均一に溶解し、これをPVAの1.25重量%水溶液(PVAはクラレ(株)製 PVA-205)40.0部に注ぎ、ホモジナイザーで10000rpmで5分間分散処理をする。得られた分散液を窒素気流下で400rpmで攪拌しながら、内温 $60^{\circ}\text{C}$ まで昇温し重合を開始する。昇温後30分後からエチルメタクリレート10.0部を1時間かけて滴下し、更に4時間重合反応を継続する。得られた反応液を100メッシュのろ布でろ過することで重合体粒子の分散液を得た。粒子の平均粒径は $0.10\mu\text{m}$ であった。また、粒子外周部のガラス転移温度は $65^{\circ}\text{C}$ であった。

## 【0051】

## 〔比較合成例－2〕

ポリスチレンオリゴマー（重量平均分子量 5000）1.0部とスチレン9.0部、ドデシルメルカプタン0.35部、2, 2'-アゾビス（2, 4-ジメチルバレロニトリル）（和光純薬製 V-65）0.21部を均一に溶解し、これをPVAの1.25質量%水溶液（PVAはクラレ（株）製 PVA-205）40.0部に注ぎ、ホモジナイザーで10000rpmで5分間分散処理をする。得られた分散液を窒素気流下で400rpmで攪拌しながら、内温60℃まで昇温し、6時間加熱攪拌することで重合体粒子の分散液を得た。粒子の平均粒径は3.2μmであった。また、粒子外周部のガラス転移温度は65℃であった。

## 【0052】

## [比較合成例-3]

ポリスチレンオリゴマー（重量平均分子量 5000）1.0部とスチレン9.0部、エチルメタクリレート10.0部、ドデシルメルカプタン0.35部、2, 2'-アゾビス（2, 4-ジメチルバレロニトリル）（和光純薬製 V-65）0.21部を均一に溶解し、これをPVAの1.25重量%水溶液（PVAはクラレ（株）製 PVA-205）80.0部に注ぎ、ホモジナイザーで10000rpmで5分間分散処理をする。得られた分散液を窒素気流下で400rpmで攪拌しながら、内温60℃まで昇温し6時間加熱攪拌して重合させた。得られた反応液を100メッシュのろ布でろ過することで重合体粒子の分散液を得た。粒子の平均粒径は3.7μmであった。また、粒子外周部のガラス転移温度は82℃であった。

## 【0053】

## [比較合成例-4]

ポリベンジルメタクリレート（重量平均分子量 10000）1.0部とベンジルメタクリレート9.0部、ドデシルメルカプタン0.20部、2, 2'-アゾビス（2, 4-ジメチルバレロニトリル）（和光純薬製 V-65）0.13部を均一に溶解し、これをPVAの1.25重量%水溶液（PVAはクラレ（株）製 PVA-205）40.0部に注ぎ、ホモジナイザーで10000rpmで5分間分散処理をする。得られた分散液を窒素気流下で400rpmで攪拌し

ながら、内温60℃まで昇温し、6時間加熱攪拌することで重合体粒子の分散液を得た。粒子の平均粒径は2.8  $\mu\text{m}$ であった。また、粒子外周部のガラス転移温度は54℃であった。

## 【0054】

## 〔比較合成例-5〕

ポリベンジルメタクリレート（重量平均分子量 10000）1.0部とベンジルメタクリレート9.0部、エチルメタクリレート5.0部、ドデシルメルカプタン0.20部、2, 2'-アゾビス（2, 4-ジメチルバレロニトリル）（和光純薬製 V-65）0.13部を均一に溶解し、これをPVAの1.25重量%水溶液（PVAはクラレ（株）製 PVA-205）60.0部に注ぎ、ホモジナイザーで10000rpmで5分間分散処理をする。得られた分散液を窒素気流下で400rpmで攪拌しながら、内温60℃まで昇温し6時間加熱攪拌して重合させた。得られた反応液を100メッシュのろ布でろ過することで重合体粒子の分散液を得た。粒子の平均粒径は2.5  $\mu\text{m}$ であった。

また、粒子外周部のガラス転移温度は59℃であった。

## 【0055】

## 〔比較合成例-6〕

ポリベンジルメタクリレート（重量平均分子量 10000）1.0部とベンジルメタクリレート9.0部、ドデシルメルカプタン0.20部、2, 2'-アゾビス（2, 4-ジメチルバレロニトリル）（和光純薬製 V-65）0.13部を均一に溶解し、これをPVAの1.25重量%水溶液（PVAはクラレ（株）製 PVA-205）60.0部に注ぎ、ホモジナイダーで10000rpmで5分間分散処理をする。得られた分散液を窒素気流下で400rpmで攪拌しながら、内温60℃まで昇温し6時間加熱攪拌して重合させた。得られた反応液に対してエチルメタクリレート5.0部、ドデシルメルカプタン0.17部、2, 2'-アゾビス（2, 4-ジメチルバレロニトリル）（和光純薬製 V-65）0.11部を均一に溶解した溶液を滴下し、室温で2時間攪拌する。窒素気流下で400rpmで攪拌しながら、内温を60℃まで昇温し6時間加熱攪拌して重合させた。得られた反応液を100メッシュのろ布でろ過することで重合体粒



子の分散液を得た。粒子の平均粒径は  $2.7 \mu\text{m}$  であった。また、粒子外周部のガラス転移温度は  $65^\circ\text{C}$  であった。

【0056】

評価結果を表1示す。

【表1】

			皮膜性	後方散乱	光拡散性	消偏性
実施例1	合成例1	ラミネートなし部	5	4	5	4
		ラミネートあり部	5	5	5	5
実施例2	合成例2	ラミネートなし部	5	4	5	4
		ラミネートあり部	5	5	5	5
実施例3	合成例3	ラミネートなし部	5	4	5	4
		ラミネートあり部	5	5	5	5
実施例4	合成例4	ラミネートなし部	5	4	5	4
		ラミネートあり部	5	5	4	5
実施例5	合成例5	ラミネートなし部	5	4	5	4
		ラミネートあり部	5	5	5	5
比較例1	比較合成例1	ラミネートなし部	5	5	1	5
		ラミネートあり部	5	5	1	5
比較例2	比較合成例2	ラミネートなし部	2	1	3	1
		ラミネートあり部	2	3	2	1
比較例3	比較合成例3	ラミネートなし部	5	4	3	5
		ラミネートあり部	5	5	1	5
比較例4	比較合成例4	ラミネートなし部	5	4	3	5
		ラミネートあり部	5	5	1	5
比較例5	比較合成例5	ラミネートなし部	5	4	3	5
		ラミネートあり部	5	5	1	5
比較例6	比較合成例6	ラミネートなし部	5	2	5	1
		ラミネートあり部	5	3	3	1

【0057】

表1に示すごとく、本実施例の光拡散体は皮膜性、後方散乱、光拡散性、消偏性がいずれにおいて優れている。一方、比較例の光拡散体は、皮膜性、後方散乱

、光拡散性、消偏性のいずれかが劣っている。

【 0 0 5 8 】

#### 実施例 6

実施例 3 で得られたラミネート済みのフィルムをコレステリックカラーフィルターを用いた反射型液晶ディスプレイの  $1/4$  λ 板と液晶セルの間に挿入したものは、挿入しないものに比べ、大幅に視野角が広がり、かつコレステリック特有の鏡面反射光がなくなり、きわめて視認性の良好なディスプレイとなった。一方、実施例 3 の粒子を、ポリエチルメタクリレートの単独重合体エマルジョン（粒径  $0.1 \mu\text{m}$ ）と、同形分重量比が  $1:2$  になるよう混合した他は実施例 3 と全く同じ方法で、塗布、重層、ラミネートして得たフィルムを同様にして反射型液晶ディスプレイの  $1/4$  λ 板と液晶セルの間に挿入したものは、ほとんど視野角が広がらなかった。

【 0 0 5 9 】

#### 【発明の効果】

本発明の光拡散体は、皮膜性、後方散乱、光拡散性、消偏性がいずれにおいて優れており、この光拡散体を用いた表示装置は、光をロスすることなく、視野角を広げることができ、偏光解消のない表示装置を提供することができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 光の後方散乱を少なく抑えながら光拡散性を確保することでき、かつ薄膜化を図ることができる光拡散体、及び光をロスすることなく、視野角を広げることができ、偏光解消のない表示装置を提供する。

【解決手段】 中心から外部に向かって屈折率が変化した粒子を自己融着させて得られる光拡散体である。粒子の外周部の成分のガラス転移温度が100℃よりも低いことが好ましく、粒子が自己融着して形成された層の一方の面に隣接かつ接触した光学的透明層が形成されていることが好ましい。表示装置はこれらの光拡散体を用いて構成される。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 5 2 0 1 ]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 1 4 日
[ 変更理由 ]	新規登録
住 所	神奈川県南足柄市中沼 2 1 0 番地
氏 名	富士写真フイルム株式会社

DECLARATION CERTIFYING ACCURACY OF  
PRIORITY DOCUMENT TRANSLATION

1. With reference to the U.S. patent application Serial No. 10/043,215, I, Hideya Munakata, hereby declare that I am familiar with the Japanese and English languages, that I prepared the attached translation of the Japanese priority documents Serial No. 11-005749, filed in Japan on January 12, 2001 (Heisei 13 Nen), entitled "Optical Diffusion Element And Display Device," upon which this application is based, and that the translation is accurate to the best of my knowledge and belief.

2. I also declare that all statements made herein of my knowledge are true and that all statements made on information and belief are believed to be true; and further these statement were made with the knowledge that willful false statement and the like so made are punishable by fine or imprisonment, or both, under Section 1001 of Title 18 of the United States Code, and that such willful false statement may jeopardize the validity of the application or any patent issuing thereon.

August 8, 2003  
Date

  
Hideya Munakata

【Name of Document】	Application for Patent
【Reference Number】	FSP-00880
【Date of Filing】	January 12, Heisei 13 (2001)
【Addressed to】	Commissioner of Patent Office
【International Classification】	G02B 5/02 G02F 1/1335
【Inventor】	
【Address】	c/o Fuji Photo Film Co. Ltd. 200 Onakasato, Fujinomiya-shi, Shizuoka-ken
【Name】	Sumitaka TATSUTA
【Inventor】	
【Address】	c/o Fuji Photo Film Co. Ltd. 200 Onakasato, Fujinomiya-shi, Shizuoka-ken
【Name】	Yuichi WAKATA
【Applicant】	
【Identification Number】	000005201
【Name】	Fuji Photo Film Co. Ltd.
【Agent】	
【Registration Number】	100079049
【Patent Attorney】	
【Name】	Atsushi NAKAJIMA
【Telephone】	03-3357-5171
【Designated Agent】	
【Registration Number】	100084995

**【Patent Attorney】****【Name】** Kazuhiro KATO**【Telephone】** 03-3357-5171**【Designated Agent】****【Registration Number】** 100085279**【Patent Attorney】****【Name】** Katsuichi NISHIMOTO**【Designated Agent】****【Registration Number】** 100099025**【Patent Attorney】****【Name】** Hiroshi FUKUDA**【Telephone】** 03-3357-5171**【Indication of Fee】****【Account Number】** 006839**【Amount of Fee】** 21000**【List of Attached Document】****【Name of Document】** Specification 1**【Name of Document】** Abstract 1**【Number of General Power】** 9800120

**【Name of Document】** SPECIFICATION

**【Title of the Invention】** Optical Diffusion Element and Display Device

**【Scope of the Invention for Patent】**

**【Claim 1】** An optical diffusion element characterized in that the optical diffusion element is obtained by causing particles having a refractivity varying from the center to the periphery thereof to be self-fusion bonded.

**【Claim 2】** An optical diffusion element as defined in claim 1, characterized in that said particle has an outermost component having a glass transition temperature lower than 100°C.

**【Claim 3】** An optical diffusion element as defined in claim 1 or 2, characterized in that optical diffusion element is formed with an optically transparent layer in contact with and adjacent to one of opposite surfaces of a layer of the particles that are self-fusion bonded.

**【Claim 4】** An optical diffusion element as defined in claim 3, characterized in that the optical transparent layer is formed in a dry-film laminating method.

**【Claim 5】** An optical diffusion element as defined in any one of the preceding claims 1 to 4, characterized in that the particle has a mean particle size between 0.5 $\mu\text{m}$  ~ 20 $\mu\text{m}$ .

**【Claim 6】** A display device characterized by using the optical diffusion element as defined in any one of the preceding claims 1 to 5.

**【Claim 7】** A display device as defined in claim 6, characterized in that the optical diffusion element is formed within a liquid crystal cell.



**【Detailed description of the invention】****【0001】****【Technical field of the invention】**

The present invention relates to an optical diffusion element and a display device, and, more particularly, to an optical diffusion element that can diffuse transmitted light forward without causing optical scattering, and a reflection type liquid crystal display which uses an optical diffusion film that does not lose light and provides a widened angle of view, an optical diffusion film that has no nature of depolarization even though it is put inside a polarization film, or a thin film optical diffusion element that shows high optical diffusion efficiency due to no nature of depolarization even though it is put within an inner surface of a liquid crystal cell and causes no turbulent orientation of liquid crystal.

**【0002】****【Prior Art】**

Optical diffusion materials are used in the fields of light modulation materials, optical elements, optical display elements, etc. Recent years, advances are made in the utilization of an optical diffusion material for improvement of display quality and viewing angle characteristics of display elements such as liquid crystal displays is made advances. Conventionally employed for providing an optical diffusion element is, for example, a procedure of forming fine concavities and convexities on a surface like a frosted glass plate or a procedure of dispersing particles having a size from several microns to tens microns in a resin film. However, while an optical diffusion element made by these procedures can cause light scattering, it is accompanied by enhanced back scattering, so as to cause a

decrease in the amount of light transmission and/or deterioration of a contrast of a displayed image. In addition, depolarization occurs, so that the optical diffusion element is hard to be used for liquid crystal displays that are strongly demand in recent years. Further, when used as a display material, the optical diffusion element increase a load of a light source due to a small amount of light transmission. In light of the above, there is a demand for an optical diffusion element that causes less back scattering and no depolarization and has a high optical diffusibility.

**【0003】**

As a means for eliminating these drawbacks, it has been known to make use of refraction of light by forming concavities and convexities in the shape of lens. However, this technique is inferior in productivity due to vexatious complications in fabrication of fine concavities and convexities. In addition, when the diffusion material is used in cells of a liquid crystal display, the liquid crystal causes turbulent orientation and, as a result, liquid crystal display causes significant deterioration of display quality due to fine concavities and convexities that are sensitive to stains and impact.

**【0004】**

It has further been known to make use of fine particles. In particular, there has been known a light diffusion element which uses fine particles having such an uniform internal distribution that a refractivity varies from the center to the surface for the purpose of using not scattering of light by particles but using refraction of light. The optical diffusion element has a secured optical diffusibility while providing somewhat less back scattering.

**【0005】**

However, in producing the optical diffusion element, the particles are dispersed in a binder and bonded together through the binder. As a result, it is difficult to increase an amount of particles existing the surface, so that the optical diffusion element is hard to have a sufficient optical diffusion effect and to be made as a thin film.

**【0006】**

**【Problems to be solved by the invention】**

It is a primary object of the present invention to provide an optical diffusion element that can be made as a thin film and has a secured optical diffusibility while is restrained from causing back scattering of light. It is another object of the present invention to provide an optical display device that has a wide angle of view without losing light and no occurrence of depolarization.

**【0007】**

**【Means for solving the problems】**

Specifically, the optical diffusion element of the present invention is:

<1> An optical diffusion element characterized in that the optical diffusion element is obtained by causing particles having a refractivity varying from the center to the periphery thereof to be self-fusion bonded,

<2> An optical diffusion element as defined in <1>, characterized in that said particle has an outermost component having a glass transition temperature lower than 100°C,

<3> An optical diffusion element as defined in <1> or <2>, characterized in that optical diffusion element is formed with an optically transparent layer in contact with and adjacent to one of opposite surfaces of a layer of the particles that are self-fusion bonded,

<4> An optical diffusion element as defined in <3>, characterized in that the optical transparent layer is formed in a dry-film laminating method,

<5> An optical diffusion element as defined in any one of <1> through <4>, characterized in that the particle has a mean particle size between  $0.5\mu\text{m}$  ~  $20\mu\text{m}$ ,

<6> A display device characterized by using the optical diffusion element as defined in any one of <1> through <5>,

<7> A display device as defined in <6>, characterized in that the optical diffusion element is formed within a liquid crystal cell.

**【0008】**

**【Embodiments of the invention】**

The optical diffusion element and the display device according to preferred embodiments of the present invention will be hereafter described.

· Method of producing polymer particle ·

As a method of producing particles which comprise more than two components and have an ununiform distribution in the particle, it is common to form core-shell latex using conventional emulsification polymerization. However, in this case, the fine particles thus produced have a particle size of  $0.1\mu\text{m}$  which is too small to show the optical diffusibility that the invention intends. It is necessary for the fine particles to have particle sizes between  $0.5\mu\text{m}$  ~  $20\mu\text{m}$ . In order to produce particles (particle sizes between  $0.5\mu\text{m}$  ~  $20\mu\text{m}$ ), various kinds of particles and methods of producing the particles are available.

**【0009】**

For example, a seed polymerization method in which fine particles (which are called

seed particles) are previously prepared and polymerized with another monomer. The seed particles are formed by polymerizing a first monomer using a soap-free emulsification polymerization, etc. The seed particles are added with a second monomer so as to be polymerized by causing the seed particles to absorb the second monomer, thereby forming a distribution in the particles. The second monomer may be added all at once, may be partly added separately over several days, or may be added separately but continually. In this event, although it is not always that the polymer made of the first monomer concentrates at the core and the polymer made of the second monomer concentrates at the shell, it is possible to control the seed particles so as to have a desirable morphology by adjusting hydrophilic properties of each monomer and an adding rate of the second monomer. (see "New Technology And Development Of Use Of Fine Polymer Particles" CMC (1997), "Polymer Latex" (New Polymer Library 26), Soichi Muroi and Ikuo Morino, Polymer Publishing Society (1988), etc.).

**【0010】**

Further, the first seed particle may be used after a growth to a desired particle size by repeating absorption and polymerization of the first monomer. In this manner, it is allowed to use a combination of a polymer made of the first monomer and a polymer made of a second monomer that are substantially different in refractivity. In this instance, each of the first and second monomers may consist of a single monomer or more than two monomers as long as there is a substantial difference in refractivity between a copolymer made of more than two first monomers and a copolymer made of more than two second monomers.

**【0011】**

In addition, the utilization can be made of micro-suspension polymerization. This method is used in ordinary suspension polymerization to produce what is called a Grin lens. (Yasuhiro Kojima et al., "Applied Optics" Vol. 33 (16), 3394, 1994) In this case, a particle that continuously varies in internal refractivity can be produced by implementing suspension polymerization of a monomer M1 added to a water solution of PVA and dropping a second monomer M2 for providing a polymer that is substantially different in refractivity from a polymer made of the monomer M1 a little later so as to polymerize it, or otherwise, by, after having formed particles by suspension polymerization of the monomer M1 added to a water solution of PVA, adding an initiator and the monomer M2 and polymerizing again. However, in the literary document, the particles have a large particle size between 0.5mm ~ 1.1mm with a purpose of usage as a Grin lens.

Accordingly, In order to use the particles for the optical diffusion element of the present invention, the particles can be adjusted to a desired particle size ( for example, between 0.5 $\mu$ m ~ 20 $\mu$ m) by implementing polymerization of the particles for Grin lens use after dispersion by a high share dispersing machine such as a homogenizer (micro-suspension polymerization).

#### 【0012】

As one of practical examples of the micro-suspension polymerization for forming micron-size particles that have a polymer distribution in a particle in the case of using the micro-suspension polymerization, an available method is such as to polymerize a monomer M1 to approximately 20% first and micro-suspend the reactant solution in an aqueous phase for a further growth of polymerization, and then causing polymerization dropping the

monomer M2. (F. Michael et al., "Journal of Polymer Science: Part A" Vol. 38, 345(2000)). In this instance, in order to adjust to a desired distribution of refractivity, it is necessary to select monomers and polymerization conditions.

**【0013】**

There is available a method in which a mixture of a polymer provided by polymerizing a monomer M1 and the monomer M1 is micro-suspended in an aqueous phase and a monomer M2 is dropped in the micro-suspension for polymerization or a method in which, after starting polymerization of the monomer M1 in a micro-suspended state, the monomer M2 is dropped in the micro-suspension for polymerization.

A method using a combination of such monomers that a polymer made of the monomer M1 and a polymer made of the monomer M2 are substantially different in refractivity is available in the present invention. In this case, each of the monomers M1 and M2 may consist of a single kind or more than two kinds of monomers as long as there is a substantial difference in refractivity between a copolymer made of a group of the monomers M1 and a copolymer made of a group of the monomers M2.

**【0014】**

In particular, the polymer particles favorable to fabricating the optical diffusion element of the present invention are desirably produced by a method described below.

That is, the polymer particles consist of a combination of at least a polymer obtained from a first group of monomers and a polymer obtained from a second group of monomers, the refractivity of the polymer obtained from the first group of monomers being substantially higher than the polymer obtained from the second group of monomers. A

polymer of the monomer selected from at least one or each of the first group of monomers and the second group of monomers is mixed to a polymerization initiator and the mixture is then dispersed in a medium. Thereafter, the monomer selected from the other group of monomers is added to the mixture dispersion and polymerized before completion of polymerization in a process in which polymer particles are formed through polymerization reaction so as thereby to form polymer particles having a mean particle size between  $0.5\mu\text{m} \sim 20\mu\text{m}$ .

**【0015】**

For forming the polymer particles, at least one or more than one monomer is selected from each of the first group of monomers and the second groups of monomers. There is no limitation on the combination of kinds of selected monomers as long as a copolymer obtained from the first group of monomers selected has a refractivity substantial higher than a copolymer obtained from the second group of monomers selected. Practically, the difference in refractivity is desirably greater than 0.01, more desirably greater than 0.05 and most desirably greater than 0.1. The polymer particle should have a refractivity that may vary toward the center and the periphery, or may be higher at the center or lower at the periphery, and preferably continuously varies. A change in refractivity of polymer particles is desirably continuous. Refractivity of polymer particles obtained from each monomer is disclosed in, for example, "Polymer Handbook" (John Wiley & Sons).

**【0016】**

In order to provide a difference of refractivity, employable as the first group of monomers are compounds each of which has at least one of an aromatic ring or at least one



of a bromine atom, a chlorine atom and a sulfur atom in one molecule and also has at least one ethylene double-bond. More specifically, enumerated as the compound are styrene, vinyl naphthalene, chlorostyrene, bromostyrene, chloromethylstyrene, methoxystyrene, methyl styrene, divinylbenzene, phenyl(meta)acrylate, benzilic(meta)acrylate, benzilic-(meta)acrylamide, 2-phenylamide(meta)acrylate, 2-(tribromophenyl)ethyl(meta)acrylate, 2-(tribromophenyloxy)ethyl(meta)acrylate, 3-(m-methylbromophenoxy)-2-hydroxypropyl-(meta)acrylate, 2, 2-bis(4-(meta)acryloyloxyethoxy-3, 5-dibromophenyl)propane, 3-(m-methylchlorophenoxy)-2-hydroxypropyl(meta)acrylate, bis(4-metachryloylthiophenyl)-sulfide, bis(4-vinylthiophenyl)sulfide, bis( $\beta$ -(meta)acryloyloxyethylthio)xylene, diallylphtarate, vinyl chloride, vinylidene chloride, benzoic vinyl, chlorobenzoic vinyl, bromobenzoic vinyl, benzoic allyl, chlorobenzoic allyl, bromobenzoic allyl, and the like. These monomers may be used independently or in combinations of two or more than two.

#### 【0017】

On the other hand, employable as the second group of monomers are compounds having none of an aromatic ring or a bromine atom, a chlorine atom and a sulfur atom in one molecule but having at least one ethylene double-bond. The followings are available for the compound: alkyl(meta)acrylate, alkylfluoride(meta)acrylate, (meta)acrylic acids, vinyl acetates, alkylvinyl ethers, and the like. The alkyl group for the alkyl(meta)acrylate is such as methyl, ethyl, n-propyl, i-propyl, n-butyl, I-butyl, t-butyl, hexyl, cyclohexyl, 2-ethylhexyl and the like. The alkylfluoride group for the alkylfluoride(meta)-acrylate is such as  $(CH_2)_mCnF_{2n+1}$  (where m is 0 to 3 and n is 1 to 19), hexachloroisopropyl, trichloroisopropyl and the like. The alkyl group for the alkylvinyl ethers is such as methyl, ethyl, n-propyl,

I-propyl, n-butyl, i-butyl, t-butyl, hexyl, cyclohexyl, 2-ethylhexyl and the like.

**【0018】**

Among combinations of these groups of monomers, it is desirable from the viewpoint of polymerization property, solubility, availability, refractivity and the like to select one from the group of styrene, substituted styrene, benzyl(meta)acrylate, 2-phenylethyl(meta)acrylate, 2-(tribromophenyl)ethyl(meta)acrylate, 2-(tribromophenyl- oxy)ethyl(meta)acrylate, bis(4-meta-cryoyltiophenyl)sulfide, bis(4-vinyltiophenyl)sulfide and diallylphthalate for the first monomer and one from the group of alkyl(meta)acrylates and alkyl(meta)acrylate fluorides for the second monomer.

**【0019】**

Employable as the polymerization initiator are conventional thermal polymerization initiators and conventional photo-polymerization initiators. For example, azo-type thermal polymerization initiators such as 2, 2'-azobisisobutyronitrile and 2, 2'- azobis (2, 4-dimethylvaleronitril) and peroxide type thermal polymerization initiators such as benzoylparoxides are available.

**【0020】**

There are compounds available as the photo-polymerization initiator such as compounds of bicyclic polyketaldonyl disclosed in U.S. Patent No. 2,367,660, compounds of acyloin ether disclosed in U.S. Patent No. 2,448,828, aromatic compounds of acyloin ether with  $\alpha$ -hydrocarbon substitute disclosed in U.S. Patent No. 2,722,521, polynuclear compounds of quinone described in U.S. Patents Nos 2,951,758 and 3,046,127, a combination of dimerized triarylimidazole and p-aminoketon described in U.S. Patent No. 3,549,367,

compounds of benzothiazole and compounds of trihalomethyl-s-triazine described in Japanese Patent Publication No. 51-48516, compounds of trihalomethyl-s-triazine described in U.S. Patent No. 4,239,850, compounds of trihalomethyloxadiazole described in U.S. Patent No. 4,212,976.

【0021】

In addition, the followings are available as the photo-polymerization initiator: aromatic ketone such as benzophenone, camphaquinone, 4, 4'-bis(dimethylamino)benzophenone, 4-methoxy-4'-dimethylaminobenzophenone, 4, 4'-dimethylaminobenzophenone, 4-dimethylaminoacetophenone, benzylanthraquinone, 2-tert-butylanthraquinone, 2-methylanthraquinone, xanthone, thiozanthone, 2-chloranthoxanthone, 2, 4-diethylthioxanthone, fluorenone, acrydon, bisacylphosphinioxides such as bis(2, 4, 6-trimethylbenzoyl)-phenylphosphinoxide, acylophosphinioxides such as Lucirin TPO,  $\alpha$ -hydroxy- or  $\alpha$ -aminoacetophenone,  $\alpha$ -hydroxycycloalkylphenylketone and dialkylacetophenone;

【0022】

benzoin and benzoinether such as benzoinmethylether, benzoinethylether and benzoinisopropylether; dimerized 2, 4, 6-triallylimidazole such as dimerized 2-(o-chlorophenyl)-4, 5-diphenylimidazole, dimerized 2-(o-chlorophenyl)-4, 5-di(methoxyphenyl)imidazole, dimerized 2-(o-fluorophenyl)-4, 5-diphenylimidazole, dimerized 2-(o-methoxyphenyl)-4, 5-diphenylimidazole, dimerize 2-(p-methoxyphenyl)-4, 5-diphenylimidazole and dimerized 2-(o-chlorophenyl)-4, 5-diphenylimidazole, compounds such as described in U.S. Patents Nos. 3,784,557, 4,252,887, 4,311,783, 4,449,349, 4,410,621 and 4,622,286;

## 【0023】

polyhalogen compounds such as carbon tetrabromide, phenyl tribromomethylsulfone and phenyl trichloromethylketone, compounds such as described in Japanese Patent Publications Nos. 57-1819 and 57-6069, Japanese Unexamined Patent Publication No. 59-133428, U.S. Patent No.3,615,455;

## 【0024】

s-triazine derivatives having a trihalogene-substituted methyl group such as 2, 4, 6-tris(trichloromethyl)-s-triazine, 2-methoxy-4, 6-bis(trichloromethyl)- s-triazine, 2-amino-4, 6-bis(trichloromethyl)-s-triazine, 2-(p-methoxystyryl)-4 and 6-bis(trichloromethyl)-s-triazine described in Japanese Unexamined Patent Publication No. 58-29803;

## 【0025】

organic peroxides such as methylethylketone peroxides, cyclohexanone peroxides, 3, 3, 5-trimethylcyclohexanone peroxides, benzoyl peroxides, ditacyaly-butyl diperoxi-isophthalate, 2, 5-dimethyl-2, 5-di(benzoylperoxy) hexane, tacyaly-butylperoxybenzoate, a, a'-bis(tacyaly-butylperoxyisopropyl)benzene, dicumylperoxide, and 3, 3', 4, 4'-tetra (tacyalybutylperoxycarbonyl)benzophenone described in Japanese Unexamined Patent Publication No. 59-189340;

## 【0026】

azinium salts described in U.S. Patent No. 4,743,530; organic boron compounds; phenylglyoxalic acid esters such as phenylglyoxalic acid methyl esters; titanoses such as bis( $\eta^5$ -2, 4-cyclopentadien-1-yl)-bis(2, 6-difluoro-3-(1H-pyrol-1-yl)- phenyl)titanium; iron

allene complexes such as  $\eta^5$ -2, 4-cyclopentadienyl- $\eta^6$ -cumenyl-iron-(1+)-hexafluorophosphate(1-); diallyliodonium salts such as diphenyliodonium salts; and triallylsulfonates such as triphenylsulfonium.

**【0027】**

More detailed examples of compounds employable as the photo-polymerization initiator or other types of photo-polymerization initiators are known at phrase [0067]~[0132] of Japanese Unexamined Patent Publication No. 10-45816.

**【0028】**

Combinations of more than two compounds may be employed as the photo-polymerization initiator. For example, desirable combinations are a combination of dimerized 2, 4, 5-triallylimidazole and mercaptobenzoxazole, a combination of 4, 4'-bis(dimethylamino)benzophenone, benzophenone and benzoinmethylether such as described in U.S. Patent No.3,427,161, a combination of benzoyl-N-methylnaphthothiazoline and 2, 4-bis(trichloromethyl)-6-(4'-methoxyphenyl)-triazole such as described in U.S. Patent No.4,239,850, a combination of dialkylamino benzoates and dimethylthioxanthone such as described in Japanese Unexamined Patent Publication No. 57-23602, and a combination of 4, 4'-bis(dimethyl- amino)benzophenone, benzophenone and polyhalogenide methyl compound such as described in Japanese Unexamined Patent Publication No. 59-78339.

**【0029】**

In the case of the photo-polymerization initiator comprising more than two materials, it is desirable to use a combination of 4, 4'-bis(dimethylamino)benzophenone and

benzophenone, a combination of 2, 4-diethylthioxanthone and 4-dimethylamino benzoethyl, or a combination of 4, 4'-bis(diethylamino)benzophenone and dimerized 2, 4, 5-tri-allylimidazole.

**【0030】**

A chain transfer agent may be employed. There are available a mercaptan type of chain transfer agents such as dodecylmercaptan, octylmercaptan and mercaptoacetic acid, a sulfide type of chain transfer agents such as dibutylsulfide and dibutyldisulfide, a halogen type of chain transfer agents such as carbon tetrachloride, chloroform, carbon tetrabromide and butylbromide, and an amine type of chain transfer agents such as triethylamine and butylamine. This chain transfer agent may be mixed with the mixture of monomers selected from first and second groups of monomers, polymers made of the selected first and second monomers and a polymerization initiator or with a monomer selected from the first or second groups of monomers, or with the both. There is no limitation on the amount of addition. It is desirable to add the chain transfer agent approximately 0.01 to 30 mol %, more desirably approximately 0.05 to 20 mol %, and most desirably approximately 0.1 to 15 mol %, with respect to the total amount of monomers.

It may be allowed to add a solvent into a monomer liquid or a mixture liquid of monomers and polymers if desirable.

**【0031】**

As a dispersing medium for polymerization of the monomers, polymers and a polymerization initiator, water or aqueous mediums are desirable. The aqueous medium is predominantly water and contains at least one of a water soluble solvent such as methanol,

ethanol, acetone and tetrahydrofuran, a water soluble polymer such as polyvinyl alcohol, poly(sodium acrylate), gelatin, methylhydroxycellulose and polyethylene glycols, and a surface active agent such as dodecyl benzensulfonic acid. These components are selected in order to provide dispersivity of the particles and to adjust a mean size of the particles in consideration of a combination with applied monomers.

【0032】

In the present invention, in the particle forming process, a polymer made of a monomer or monomers selected from one of the first and second groups are used together with the selected monomers and a polymerization initiator. The mean size of particles can desirably be adjusted by selecting a specific mean molecular weight of the polymer, a weight ratio of the polymer relative to the first group monomer or the second group monomer, and dispersing conditions (dispersing apparatus, a speed of rotation, a time of dispersion, etc.). Though the combination of these conditions can not be indiscriminately determined, it is desirable to employ a specific mean molecular weight of 2000 ~ four hundreds thousands, and desirably 2000 ~ one hundred thousands, a weight ratio of the polymer relative to the first group monomer or the second group monomer of 5 ~ 80/95 ~ 20, and desirably 5 ~ 50/95 ~ 5. For dispersion, conventional dispersing apparatus such as a modiniser and a bead mill may be used under proper dispersing conditions.

【0033】

In this manner, a dispersion mixture of a polymer made of a monomer or monomers selected from one of the first and second groups, the selected monomers and a polymerization initiator is obtained. The mean size of dispersed particles, which has an

influence on the size of optical diffusion particles as a final product, is desirable between  $0.1\mu\text{m} \sim 40\mu\text{m}$ , and more desirable between  $0.8\mu\text{m} \sim 10\mu\text{m}$ .

【0034】

Subsequently, polymerization of the dispersion mixture is started. The dispersion mixture is heated when it contains a thermal polymerization initiator or exposed to light when it contains a photo-polymerization initiator. The polymerization process is desirably performed in a nitrogen stream in order to control a halt of polymerization. In the polymerization process, a monomer or monomers selected from another monomer group (the second monomer group when the monomer used in the first step is of the first monomer group or, on the contrary, the first monomer group when the monomer used in the first step is of the second monomer group) is added into the dispersion mixture. The monomer is desirably added continually but may be added all at once or little by little at several times.

【0035】

The dropping of the monomer may be started at the same time of a start of a first step polymerization of the monomer or at an interval of time from a start of a first step polymerization of the monomer and is desirably started before substantial completion of the first step polymerization of the monomer. It can be determined on the basis of a polymerizing time, a state of dispersing liquid, viscosity a residual amount of monomer and the like whether the first step polymerization has substantially been completed. In the case where the determination is made on the basis of a polymerizing time, a guide line of the polymerizing time is approximately 2 ~ 6 hours, and preferably 2 ~ 5 hours but depends on



other polymerizing conditions. Though there is no limitation on the speed of dropping a monomer, it is desirable to drop the whole amount of monomer within 10 minutes ~ 3 hours.

The polymer particle produced through these steps has refractivity substantially different between the center and the periphery thereof and a mean particle size between  $0.5\mu\text{m}$  ~  $20\mu\text{m}$ , more desirably between  $1\mu\text{m}$  ~  $10\mu\text{m}$ , and most preferably between  $1\mu\text{m}$  ~  $5\mu\text{m}$ . If the mean size of the polymer particles is lower than  $0.5\mu\text{m}$ , the polymer particles are not effective in the diffusion of light. On the other hand, if the mean size of the polymer particles is higher than  $20\mu\text{m}$ , the polymer particles make a resin film too thick or make the resin film surface uneven. As a result, such polymer particles are undesirable as optical diffusion particles because they are hardly distributable in a liquid crystal cell.

#### 【0036】

In the polymerization process, the shell of the polymer particle is formed through polymerization of the monomer that is dropped. The glass transition temperature of the polymer forming the shell is desirably lower than  $100^{\circ}\text{C}$  from the viewpoint of self-fusion between particles formed in the particle forming process, and more desirably between  $50^{\circ}\text{C}$  ~  $90^{\circ}\text{C}$ . From these viewpoints, it is desirable to employ as the monomer to be dropped in the polymerizing process ethylmetacrylate, cyclohexylmetacrylate, 2-ethylhexylmethacrylate or trifluoroethylmetacrylate.

#### 【0037】

· Optical diffusion element ·

Employable as a method of producing the optical diffusion element of the present

invention is the process of preparing the polymer dispersion obtained in the step of polymerization of the optical diffusive particles so as to contain a specified particle size of particles by the use of a specified mesh of filter fabric and coating and drying the polymer dispersion on a transparent substrate such as a glass, a tricellulose acetate film, a polyethylene terephtharate film, a polymethyl metacrylate film, a norubolnene film and a polycarbonate film and the like. The drying process forms a diffusion layer with the polymer particles bonded together through self-fusion and closely crowded therein. The polymer dispersion can be coated by a conventional coating method such as a wire bar coating, an extrusion coating, a doctor blade coating, a spin coating, a slit dye coating and the like. Further, the polymer dispersion may be coated on a temporary support and dried, and thereafter dry-laminated on a desired substrate by dry-laminating.

**【0038】**

The term “self-fusion” as used herein shall mean and refer to the state that polymer particles are interfused together in a form of multiple layers. Accordingly, in the case where a water soluble polymer is used as a dispersion stabilizing agent in the polymerization process, the term “self-fusion” covers the state that polymers forming shells of polymer particles are heated and interfused together. The optical diffusion layer that is formed by the self-fusion of polymer particles does not cause a light transmission loss due to light scattering and depolarization that are common with optical diffusion layers in which there is produced an interface between outer shells of polymer particles and a binder for interfusing the polymer particles. When the optical diffusion element has no depolarization, the optical diffusion element can be disposed on the inside of a polarization

film or in the inside of a cell of LCD. The display element can have an improved resolution due to less blurring of an image as the optical diffusion element is positioned as closer to liquid crystal pixels as possible.

**【0039】**

Although the optical diffusion element produces an optical diffusion effect when polymer particles are laid in a single row in a direction of thickness of the element, the optical diffusion element is desirably layered so that polymer particles are laid in a plurality of, for example five to ten, rows in the direction of thickness of the element.

**【0040】**

In addition, the optical diffusion layer can be stratified due to the self-interfusion bonding of polymer particles without using a binder and, as a result, optical diffusion layer having a high distribution density can be formed. Therefore, the optical diffusion element can be provided with a high diffusion effect and can be made as a thin film. The thinned optical diffusion element is effective in order to secure orientation of a liquid crystal on the inside of a liquid crystal cell but desired to have a surface as flat and smooth as possible. For making the surface of the optical diffusion element flat and smooth, it is desirable to form a stratified optical diffusion layer adjacent to and in contact with a surface of the plane on which an optically transparent layer is formed self-fusion bonding of the polymer particles to one another.

**【0041】**

Generally, in the case where an optical diffusion layer is formed by self-fused polymer particles, when a transparent film is coated or laminated on the optical diffusion layer,

whitish luster due to surface scattering is removed by surface irregularities. Since it is observed through a cross Nicol that the surface scattering is somewhat depolarized, it is desirable to laminate the transparent film in order to place surface scattering inside a polarization film. However it is possibly favorable to place it on the outside of the polarization film because it rather spontaneously develops an anti-glare (a regular reflection prevention) effect.

There are two types of LCD, transmissive type and reflection type, the optical diffusion element of the present invention can be applied to both types of LCD and is characterized by not losing brightness and widening an angle of view, in particular, by not disordering color gradation balance. Further, these effects are enhanced by using it together with a collimated light source.

**【0042】**

The optical diffusion element may be provided with a hard coat layer, an anti-contamination layer, an anti-reflection layer, anti-glare layer, a flattening layer, an adhesion layer or an anti-static layer on either one or both of the opposite surfaces.

**【0043】**

**[Embodiments]**

Although the following explanation will be given in connection with embodiments of the present invention, nevertheless, the present invention is not in any way limited by these embodiments. Unless otherwise noticed, the term “part” shall mean “weight part.”

Hereafter, evaluations on example optical diffusion elements and comparative optical diffusion elements were made as follows:

A dispersing material of polymer particles prepared for each of synthetic examples and comparative examples was coated on a non-orientated triacetate film so as to have a 10 g/m<sup>2</sup> of solid content and heated and dried at 120°C in an oven. The coated material was partly laminated with a transparent dry laminate film (a copolymer having a component ratio in mol % of methacrylic acid : methyl methacrylate : ethyl hexylacrylate : benzilic methacrylate = 28.8 : 55 : 11.7 : 4.5) of 15µm thickness.

【0044】

[Evaluation method]

Hereafter, the example elements and the comparative elements were evaluated on the basis of the following items in a five point system. A greater point indicates a higher quality.

(Filming property) : The outer appearance of the film was visually observed. The element was evaluated to be more favorable as the film appearance is more uniform.

(Back scattering) : The film attached onto a black specular plate was visually observed from the above. The element was evaluated to be more favorable as the film was more black.

(Optical diffusibility) : The element secured onto a film with aluminum coated by evaporation was observed from the above. The element was evaluated to be more favorable as the element looked more white as a result of losing metallic luster.

(Depolarization) : The element was secured onto a film with aluminum coated by

evaporation and provided with a  $1/4 \lambda$ -plate and a linear polarizing plate secured in this order onto the element so as to cut specular reflection light completely. The element was evaluated to be more favorable as it looked more black.

【0045】

[Synthetic Example 1]

A mixture was prepared by adding a uniform solution of one part of polystyrene oligomer (specific mean molecular weight: 5000), 9.0 parts of styrene, 0.35 parts of dodecyl mercaptan and 0.21 parts of 2, 2'-azobis(2, 4-dimethylvaleronitrile) (V-65 distributed by Wako Junyaku Co., Ltd.) to 40.0 parts of 1.25 weight % PVA aqueous solution (PVA-205 distributed by Kurare Co., Ltd.) and then treated for dispersion for five minutes in a homogenizer rotating at 10,000 rpm. The resultant dispersion was heated to an internal temperature of 60°C while being stirred at 400 rpm in a nitrogen stream so as to start polymerization. After a lapse of 30 minutes from the temperature rise, ten parts of ethyl methacrylate was dropped into the dispersion taking one hour and the polymerization was continued for four hours. A dispersion of polymer particles was prepared by filtering the reacted liquid through a 100 mesh filter fabric. The mean particle size was 2.4 $\mu$ m, and the glass transition temperature of the periphery of the polymer particle was 65°C.

【0046】

[Synthetic Example 2]

A dispersion of polymer particles was prepared in the same manner as Synthetic Example 1 except using 4.75 parts of ethyl methacrylate and 0.25 parts of methacrylic acid

as a substitute for ten parts of ethyl methacrylate and changing a dropping time from One hour to 30 minutes. The mean particle size was  $4.1\mu\text{m}$ , and the glass transition temperature of the periphery of the polymer particle was  $71^{\circ}\text{C}$ .

【0047】

[Synthetic Example 3]

A mixture was prepared by adding a uniform solution of one part of polybenzil methacrylate (specific mean molecular weight: 10,000), 9.0 parts of benzil methacrylate, 0.20 parts of dodecyl mercaptan and 0.13 parts of 2, 2'-azobis(2, 4-dimethylvaleronitrile) (V-65 distributed by Wako Jyunyaku Co., Ltd.) to 40.0 parts of 1.25 weight % PVA aqueous solution (PVA-205 distributed by Kurare Co., Ltd.). The mixture was subjected to a dispersing treatment for five minutes in a homogenizer rotating at 10,000 rpm. The resultant dispersion was heated to a temperature of  $60^{\circ}\text{C}$  while being stirred at 400 rpm in a nitrogen stream so as to start polymerization. After a lapse of 30 minutes from the temperature rise, five parts of ethyl methacrylate was dropped into the dispersion taking 30 minutes and the polymerization was continued for four hours. A dispersion of polymer particles was prepared by filtering the product of the reacted liquid through a 100 mesh filter fabric. The mean particle size was  $3.1\mu\text{m}$ , and the glass transition temperature of the periphery of the polymer particle was  $65^{\circ}\text{C}$ .

【0048】

[Synthetic Example 4]

A dispersion of polymer particles was prepared in the same manner as Synthetic Example 3 except dropping five parts of ethyl methacrylate taking 30 minutes not after a

lapse of 30 minutes from after the temperature rise to 60°C but immediately after the temperature rise to 60°C. The mean particle size was 2.7 $\mu$ m, and the glass transition temperature of the periphery of the polymer particle was 65°C.

**【0049】**

**[Synthetic Example 5]**

A mixture was prepared by adding a uniform solution of 10.0 parts of benzil methacrylate, 0.20 parts of dodecyl mercaptan and 0.13 parts of 2, 2'-azobis(2, 4-dimethylvaleronitrile) (V-65 distributed by Wako Jyunyaku Co., Ltd.) to 40.0 parts of 1.25 weight % PVA aqueous solution (PVA-205 distributed by Kurare Co., Ltd.). The mixture was subjected to a dispersing treatment for five minutes in a homogenizer rotating at 3,000 rpm. The resultant dispersion was heated to a temperature of 60°C while being stirred at 400 rpm in a nitrogen stream, so as to start polymerization. After a lapse of 30 minutes from the temperature rise, five parts of ethyl methacrylate was dropped into the dispersion taking 30 minutes and the polymerization was continued for four hours. A dispersion of polymer particles was prepared by filtering the product of the reacted liquid through a 100 mesh filter fabric. The mean particle size was 1.9 $\mu$ m, and the glass transition temperature of the periphery of the polymer particle was 65°C.

**【0050】**

**[Comparative Synthetic Example 1]**

A mixture was prepared by adding a uniform solution of 10.0 parts of styrene, 0.35 parts of dodecyl mercaptan and 0.21 parts of 2, 2'-azobis(2, 4-dimethylvaleronitrile) (V-65 distributed by Wako Jyunyaku Co., Ltd.) to 40.0 parts of 1.25 weight % PVA aqueous



solution (PVA-205 distributed by Kurare Co., Ltd.). The mixture was subjected to a dispersing treatment for five minutes in a homogenizer rotating at 10,000 rpm. The resultant dispersion was heated to a temperature of 60°C while being stirred at 400 rpm in a nitrogen stream, so as to start polymerization. After a lapse of 30 minutes from the temperature rise, five parts of ethyl methacrylate was dropped into the dispersion taking one hour and the polymerization was continued for four hours. A dispersion of polymer particles was prepared by filtering the product of the reacted liquid through a 100 mesh filter fabric. The mean particle size was 0.10 $\mu$ m, and the glass transition temperature of the periphery of the polymer particle was 65°C.

**【0051】**

**[Comparative Synthetic Example 2]**

A mixture was prepared by adding a uniform solution of 1.0 parts of polystyrene oligomer (specific mean molecular weight: 5000), 9.0 parts of styrene, 0.35 parts of dodecyl mercaptan and 0.21 parts of 2, 2'-azobis(2, 4-dimethylvaleronitrile) (V-65 distributed by Wako Jyunyaku Co., Ltd.) to 40.0 parts of 1.25 weight % PVA aqueous solution (PVA-205 distributed by Kurare Co., Ltd.). The mixture was subjected to a dispersing treatment for five minutes in a homogenizer rotating at 10,000 rpm. The resultant dispersion was heated to a temperature of 60°C while being stirred at 400 rpm in a nitrogen stream so as to continue polymerization for six hours. A dispersion of polymer particles was prepared by filtering the product of the reacted liquid through a 100 mesh filter fabric. The mean particle size was 3.2 $\mu$ m, and the glass transition temperature of the periphery of the polymer particle was 65°C.

**【0052】****[Comparative Synthetic Example 3]**

A mixture was prepared by adding a uniform solution of 1.0 parts of polystyrene oligomer (specific mean molecular weight: 5000), 9.0 parts of styrene, 10.0 parts of ethyl methacrylate, 0.35 parts of dodecyl mercaptan and 0.21 parts of 2, 2'-azobis(2, 4-dimethylvaleronitrile) (V-65 distributed by Wako Jyunyaku Co., Ltd.) to 80.0 parts of 1.25 weight % PVA aqueous solution (PVA-205 distributed by Kurare Co., Ltd.). The mixture was subjected to a dispersing treatment for five minutes in a homogenizer rotating at 10,000 rpm. The resultant dispersion was heated to a temperature of 60°C while being stirred at 400 rpm in a nitrogen stream so as to continue polymerization for six hours. A dispersion of polymer particles was prepared by filtering the product of the reacted liquid through a 100 mesh filter fabric. The mean particle size was 3.70 $\mu$ m, and the glass transition temperature of the periphery of the polymer particle was 82°C.

**【0053】****[Comparative Synthetic Example 4]**

A mixture was prepared by adding a uniform solution of one part of polybenzil methacrylate (specific mean molecular weight: 10,000), 9.0 parts of benzil methacrylate, 0.20 parts of dodecyl mercaptan and 0.13 parts of 2, 2'-azobis(2, 4-dimethylvaleronitrile) (V-65 distributed by Wako Jyunyaku Co., Ltd.) to 40.0 parts of 1.25 weight % PVA aqueous solution (PVA-205 distributed by Kurare Co., Ltd.). The mixture was subjected to a dispersing treatment for five minutes in a homogenizer rotating at 10,000 rpm. The resultant dispersion was heated to a temperature of 60°C while being stirred at 400 rpm in a

nitrogen stream so as to continue polymerization for six hours. A dispersion of polymer particles was prepared by filtering the product of the reacted liquid through a 100 mesh filter fabric. The mean particle size was 2.8 $\mu$ m, and the glass transition temperature of the periphery of the polymer particle was 54°C.

**【0054】**

**[Comparative Synthetic Example 5]**

A mixture was prepared by adding a uniform solution of one part of polybenzil methacrylate (specific mean molecular weight: 10,000), 9.0 parts of benzil methacrylate, 5.0 parts of ethyl methacrylate, 0.20 parts of dodecyl mercaptan and 0.13 parts of 2, 2'-azobis(2, 4-dimethylvaleronitrile) (V-65 distributed by Wako Jyunyaku Co., Ltd.) to 60.0 parts of 1.25 weight % PVA aqueous solution (PVA-205 distributed by Kurare Co., Ltd.). The mixture was subjected to a dispersing treatment for five minutes in a homogenizer rotating at 10,000 rpm. The resultant dispersion was heated to a temperature of 60°C while being stirred at 400 rpm in a nitrogen stream so as to continue polymerization for six hours. A dispersion of polymer particles was prepared by filtering the product of the reacted liquid through a 100 mesh filter fabric. The mean particle size was 2.5 $\mu$ m, and the glass transition temperature of the periphery of the polymer particle was 59°C.

**【0055】**

**[Comparative Synthetic Example 6]**

A mixture was prepared by adding a uniform solution of one part of polybenzil methacrylate (specific mean molecular weight: 10,000), 9.0 parts of benzil methacrylate,

0.20 parts of dodecyl mercaptan and 0.13 parts of 2, 2'-azobis(2, 4-dimethylvaleronitrile) (V-65 distributed by Wako Jyunyaku Co., Ltd.) to 60.0 parts of 1.25 weight % PVA aqueous solution (PVA-205 distributed by Kurare Co., Ltd.). The mixture was subjected to a dispersing treatment for five minutes in a homogenizer rotating at 10,000 rpm. A uniform solution of 5.0 parts of ethyl methacrylate, 0.17 parts of dodecyl mercaptan and 0.11 parts of 2, 2'-azobis(2, 4-dimethylvaleronitrile) (V-65 distributed by Wako Jyunyaku Co., Ltd.) was dropped into the dispersion and stirred at a room temperature for two hours. The resultant dispersion was heated to a temperature of 60°C while being stirred at 400 rpm in a nitrogen stream so as to continue polymerization for six hours. A dispersion of polymer particles was prepared by filtering the product of the reacted liquid through a 100 mesh filter fabric. The mean particle size was 2.7 $\mu$ m, and the glass transition temperature of the periphery of the polymer particle was 65°C.

【0056】

The result of evaluation is shown in Table 1.

【Table 1】

		Film Property	Back Scattering	Diffusibility	Depolarization
Example Element 1	Not Laminated Part	5	4	5	4
	Laminated Part	5	5	5	5
Example Element 2	Not Laminated Part	5	4	5	4
	Laminated Part	5	5	5	5
Example Element 3	Not Laminated Part	5	4	5	4

	Laminated Part	5	5	5	5
Example Element 4	Not Laminated Part	5	4	5	4
	Laminated Part	5	5	4	5
Example Element 5	Not Laminated Part	5	4	5	4
	Laminated Part	5	5	5	5
Comparative Element 1	Not Laminated Part	5	5	1	5
	Laminated Part	5	5	1	5
Comparative Element 2	Not Laminated Part	2	1	3	1
	Laminated Part	2	3	2	1
Comparative Element 3	Not Laminated Part	5	4	3	5
	Laminated Part	5	5	1	5
Comparative Element 4	Not Laminated Part	5	4	3	5
	Laminated Part	5	5	1	5
Comparative Element 5	Not Laminated Part	5	4	3	5
	Laminated Part	5	5	1	5
Comparative Element 6	Not Laminated Part	5	2	5	1
	Laminated Part	5	3	3	1

## 【0057】

As shown in Table 1, the optical diffusion elements of the present invention are superior in all of filming property, back scattering, optical diffusibility and depolarization. On the other hand, the optical diffusion elements of the comparative examples are inferior in any

one of filming property, back scattering, optical diffusibility and depolarization.

**【0058】**

**Embodiment 6**

A liquid crystal cell of a reflection type liquid crystal display with a cholesteric color filter incorporated therein that has a laminated film prepared in Example 3 interposed between a  $1/4\lambda$ -plate and a liquid crystal cell provides a more greatly widened angle of view, causes less specular reflection of light that is peculiar to cholesteric, and provides more favorable visibility as compared with a reflection type liquid crystal display that has no laminated film. On the other hand, a liquid crystal display with a film coated, multi-layered and laminated in the same manner as Example 3 except mixing polymer particles used in Example 3 and an emulsion of an independent polymer of polyethyl methacrylate (particle size:  $0.1\mu\text{m}$ ) so as to have a solid content weight ration of 1 : 2 that was interposed between a  $1/4\lambda$ -plate and a liquid crystal cell showed almost no improvement of angle of view.

**【0059】**

**【Effect of the invention】**

The optical diffusion element of the present invention is excellent at all of filming property, back scattering, optical diffusibility and depolarization, and a display device incorporating the optical diffusion element can have a wide angle of view without causing a light loss and is prevented from depolarization.

11-005749

**【Name of document】** ABSTRACT

**【Abstract】**

**【Object】** To provide an optical diffusion element that secures optical diffusibility while restraining back scattering as much as possible and is capable of being made as a thin film and a display device that has a widened angle of view without causing a light loss and is not accompanied by depolarization.

**【Solution】**

An optical diffusion element obtained by causing polymer particles, each of which changes in refractivity from the center to the periphery thereof to bond together through self-fusion. The particle has a glass transition temperature that is desirably lower than 100°C and it is preferred to form an optically transparent layer adjacent to and in contact with either one of opposite surfaces of a layer of the particles bonded through self-fusion. The display device is structured using the optical diffusion element.

**【Selected drawing】** None